

## POLYHYDRIC PHENOL COMPOUND HAVING INDANE SKELETON AND EPOXY RESIN CURING AGENT

**Publication number:** JP6107583

**Publication date:** 1994-04-19

**Inventor:** MURATA YASUYUKI; YAMADA YASUHIRO;  
HAYAKAWA ATSUTO; NAKANISHI YOSHINORI

**Applicant:** YUKA SHELL EPOXY KK

**Classification:**

- **international:** C07C39/17; C08G8/20; C08G59/62; C08L63/00;  
C09K3/10; C07C39/00; C08G8/00; C08G59/00;  
C08L63/00; C09K3/10; (IPC1-7): C07C39/17;  
C08G8/20; C08G59/62; C09K3/10

- **European:**

**Application number:** JP19920296262 19920925

**Priority number(s):** JP19920296262 19920925

[Report a data error here](#)

### Abstract of JP6107583

**PURPOSE:** To provide a novel compound useful as a curing agent for epoxy resins and giving cured epoxy resins excellent in low hygroscopicity and low stress. **CONSTITUTION:** The compound of formula I [R<1>, R<2> are H, 1-10C alkyl, (substituted)phenyl, but R<1> and R<2> may be combined with each other to form a ring; (m) is 0,1-5]. For example, a compound of formula III. For example, the compound of formula I is obtained by condensation-reacting 6-hydroxy-1,3,3- trimethyl-1-p-hydroxyphenylindane with an aldehyde such as formaldehyde preferably in a molar ratio of 1:0.2-0.8 in the presence of an acidic catalyst at 20-200 deg.C for 1-20hr.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-107583

(43)公開日 平成6年(1994)4月19日

(51) Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	府内整理番号	F I	技術表示箇所
C 07 C 39/17		8930-4H		
C 08 G 8/20	N B V	8416-4J		
	59/62	N J S	8416-4J	
C 09 K 3/10		L		

審査請求 未請求 請求項の数4(全12頁)

(21)出願番号	特願平4-296262	(71)出願人	000246239 油化シエルエポキシ株式会社 東京都港区西麻布4丁目17番30号
(22)出願日	平成4年(1992)9月25日	(72)発明者	村田 保幸 三重県四日市市塩浜町1番地 油化シエル エポキシ株式会社開発研究所内
		(72)発明者	山田 康博 三重県四日市市塩浜町1番地 油化シエル エポキシ株式会社開発研究所内
		(72)発明者	早川 淳人 三重県四日市市塩浜町1番地 油化シエル エポキシ株式会社開発研究所内
		(74)代理人	弁理士 渡辺 秀夫
			最終頁に続く

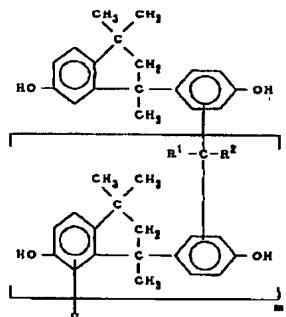
(54)【発明の名称】 インダン骨格を有する多価フェノール化合物及びエポキシ樹脂硬化剤

(57)【要約】 (修正有)

【目的】 エポキシ樹脂の硬化剤として使用した場合に耐熱性に優れ、かつ低吸湿性及び低応力性に優れた硬化物を与えることが出来る多価フェノール化合物を提供する。

【構成】 次式等のインダン骨格を有する多価フェノール化合物。該多価フェノール化合物を主成分とするエポキシ樹脂硬化剤及び該硬化剤を含有するエポキシ樹脂組成物。

基、(置換)フェニル基であり、R<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>はそれぞれ結合して環を形成しても良い。mは平均値でそれぞれ0.1~5の数である。)



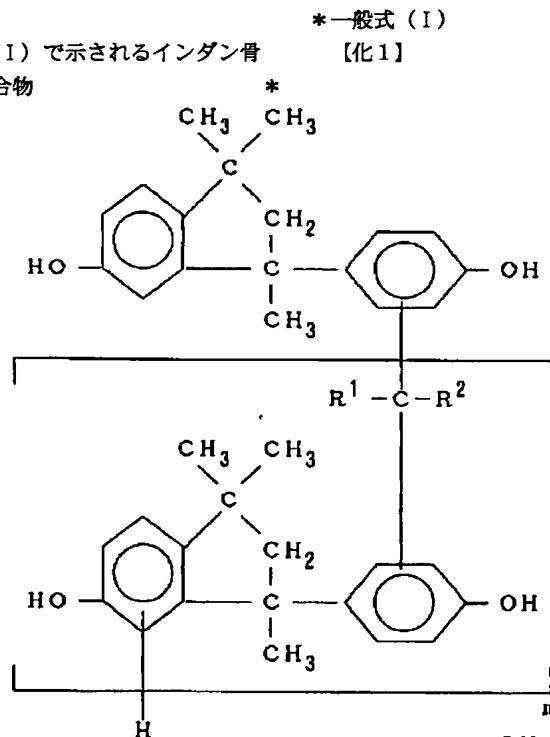
(R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>は水素原子、炭素数1~10のアルキル)

I

2

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(I)で示されるインダン骨格を有する多価フェノール化合物



(R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>は水素原子、炭素数1~10のアルキル基、置換又は無置換のフェニル基であり、R<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>はそれぞれ結合して環を形成しても良い。mは平均値でそれぞれ0.1~5の数である。)

【請求項2】 下記一般式(II)で示されるインダン骨格を有する多価フェノール化合物

一般式(I I)

【化2】

30

40

(R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は水素原子、炭素数1~10のアルキル基、置換又は無置換のフェニル基であり、R<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>は

それぞれ結合して環を形成しても良い。 $n$ は平均値でそれぞれ0.1~5の数である。)

【請求項3】 請求項1または2に記載の多価フェノール化合物を主成分とするエポキシ樹脂硬化剤。

【請求項4】 請求項3に記載のエポキシ樹脂硬化剤を含有せしめてなる硬化性エポキシ樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は新規なインダン骨格を有する多価フェノール化合物に関し、この化合物はエポキシ樹脂硬化剤として特に優れたものである。

10

【0002】

【従来の技術】 多価フェノール化合物は、ポリエスチル・やポリカーボネートなどの原料として用いられ、またそれ自体でも熱硬化性樹脂として、積層、塗装、接着、封止及び成形等の各種の分野で使用され、さらにエポキシ樹脂硬化剤としても用いられている。近年、高分子材料の使用条件が苛酷になるに従って、高分子材料に対して要求される諸特性は厳しくなり、一般に用いられるフェノールとホルムアルデヒドなどとから製造されるフェノール樹脂では、要求特性を充分に満足出来なくなってきた。例えば、ノボラック型フェノール樹脂を硬化剤とする硬化性エポキシ樹脂組成物は、半導体封止用に用いられているが、この分野でも、要求性能は、厳しくなっている。すなわち、半導体装置の高集積化が進み、半導体素子の大型化が著しいとともに、パッケージそのものが小型化、薄型化している。また、半導体装置の実装も表面実装へと移行しており、表面実装においては半導体装置がハンダ浴に直接浸漬され、高温にさらされる為、パッケージ全体に大きな応力がかかり、封止材にクラックが入る。そのために、耐ハンダクラック性の良好な封止材には、高い耐熱性（すなわち高いガラス転移温度）と低吸湿性及び低応力性が要求され、現在主として用いられているクレゾールノボラック型エポキシ樹脂と、フェ

ノールノボラック樹脂硬化剤とからなるエポキシ樹脂封止材では、耐熱性、低吸湿性及び低応力性とも充分なものとは言えなくなってきた。一般に、テトラメチルビフェノール型エポキシ樹脂は、低応力であり、かつ低吸湿であるため耐ハンダクラック性に優れることが知られているが（特開昭61-47725号公報）、ガラス転移温度が充分とはいえない。フェノール類とヒドロキシベンズアルデヒド類との縮合物を硬化剤として用いるか、その縮合物から誘導されるエポキシ樹脂を用いれば、高ガラス転移温度となるが（特開昭57-34122号公報、特開昭57-141419号公報）、応力は大きく低吸湿性も損なわれるため、耐ハンダクラック性は改良されない。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、種々の用途に使用でき、特にエポキシ樹脂の硬化剤として使用した場合に耐熱性に優れ、かつ低吸湿性及び低応力性に優れた硬化物を与えることが出来る新規な多価フェノール化合物を提供すること、同化合物を主成分とするエポキシ樹脂硬化剤を提供すること、及び同化合物を用いた硬化性エポキシ樹脂組成物を提供することを目的とするものである。

20

【0004】

【課題を解決するための手段】 本発明者等は、前記の課題を解決するために種々研究を重ねた結果、特定のインダン骨格含有多価フェノール化合物によってその目的を達成できたのである。

【0005】 本発明は、

「1. 下記一般式（I）で示されるインダン骨格を有する多価フェノール化合物

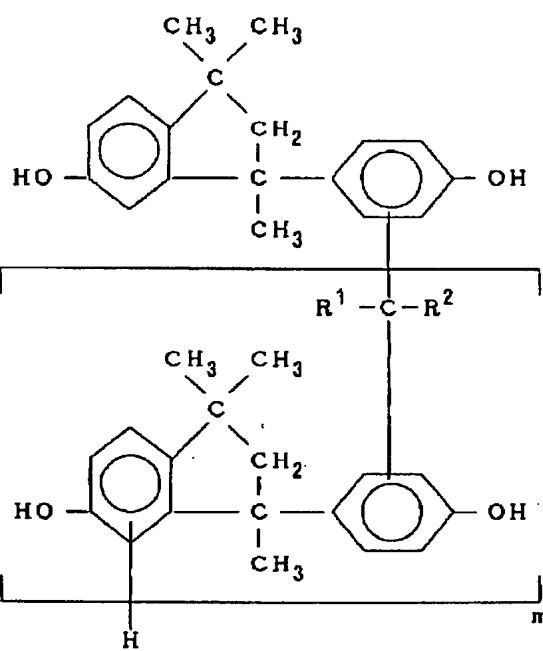
一般式（I）

【0006】

【化3】

5

6



【0007】 ( $R^1$ 、 $R^2$  は水素原子、炭素数 1~10 のアルキル基、置換又は無置換のフェニル基であり、 $R^1$  と  $R^2$  はそれぞれ結合して環を形成しても良い。 $m$  は平均値でそれぞれ 0、1~5 の数である。)

2. 下記一般式 (II) で示されるインダン骨格を有する多価フェノール化合物

一般式 (II)

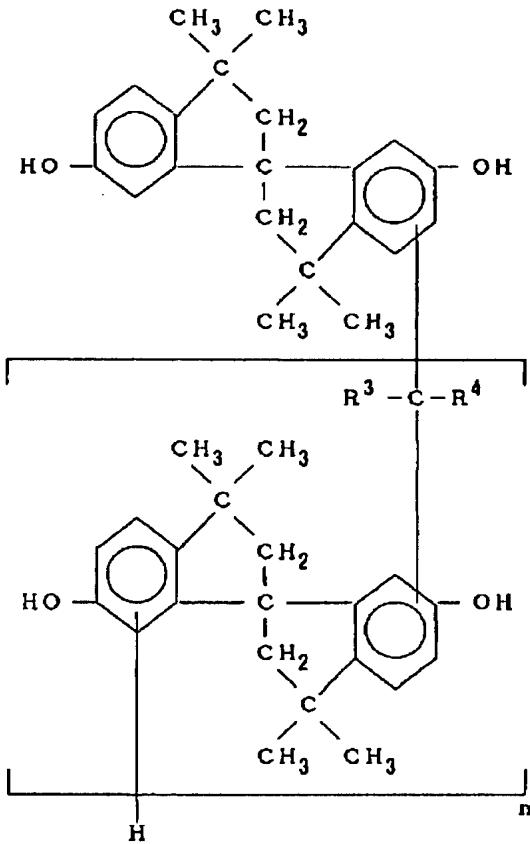
【0008】

【化4】

30

40

【0009】 ( $R^3$ 、 $R^4$  は水素原子、炭素数 1~10 のアルキル基、置換又は無置換のフェニル基であり、 $R^3$  と  $R^4$  はそれぞれ結合して環を形成しても良い。 $n$  は平均値でそれぞれ 0、1~5 の数である。)



3. 1項または2項に記載の多価フェノール化合物を  
主成分とするエポキシ樹脂硬化剤。

4. 3項に記載のエポキシ樹脂硬化剤を含有せしめて  
なる硬化性エポキシ樹脂組成物。」に関する。

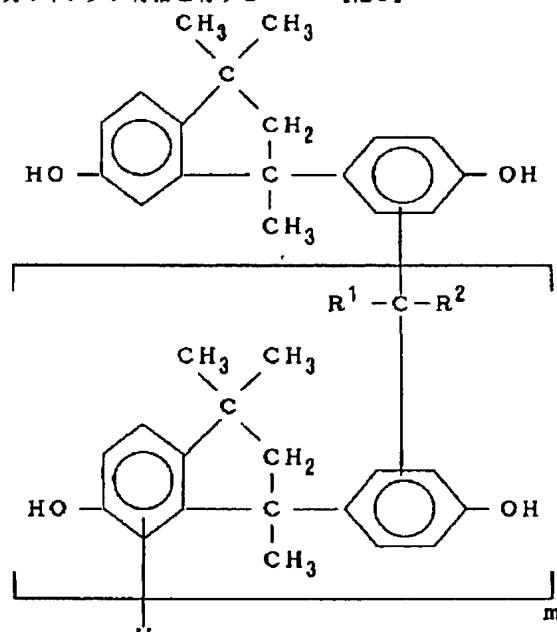
【0010】すなわち、本発明のインダン骨格を有する\*

\*多価フェノール化合物は、下記の構造式(I)又は式  
(II)で示される多価フェノール化合物である。式

(I)

【0011】

【化5】

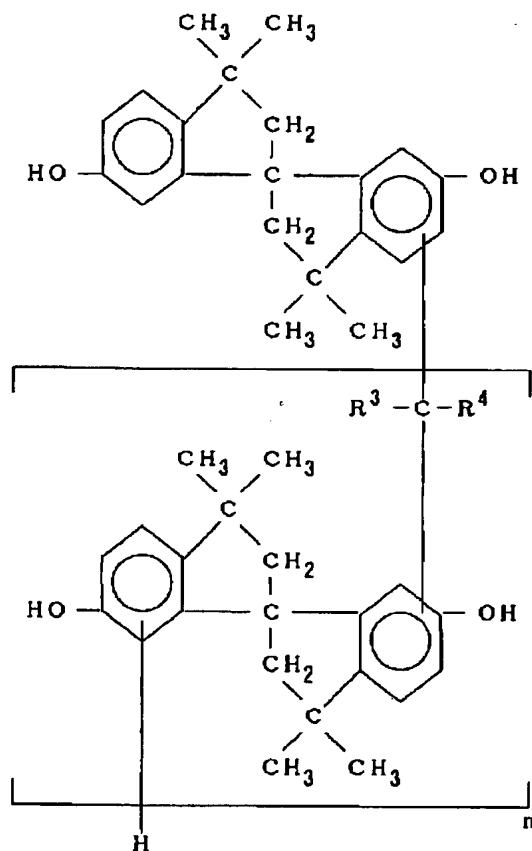


【0012】(R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>は水素原子、炭素数1～10  
のアルキル基、置換又は無置換のフェニル基であり、R  
<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>はそれぞれ結合して環を形成しても良い。mは

平均値でそれぞれ0、1～5の数である。)式(II)

【0013】

【化6】



【0014】(R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は水素原子、炭素数1~10のアルキル基、置換又は無置換のフェニル基であり、R<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>はそれぞれ結合して環を形成しても良い。nは平均値でそれぞれ0.1~5の数である。)また、本発明のエポキシ樹脂硬化剤は、前記の多価フェノール化合物を主成分とする硬化剤である。さらに、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂にその硬化剤として前記の硬化剤を含有せしめてなる硬化性エポキシ樹脂組成物である。

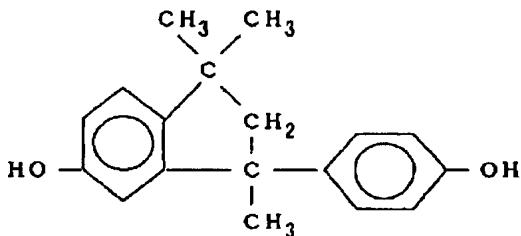
## 【0015】

【作用】本発明の多価フェノール化合物は、インダン骨格含有ビスフェノール類と、アルデヒド類及び/又はケトン類とを酸性触媒の存在下に、縮合反応させノボラック型フェノール系樹脂としたものである。その多価フェノール化合物の製造原料としてのインダン骨格を有するビスフェノール類は下記構造式(I I I)または(I V)で示される6-ヒドロキシ-1, 3, 3-トリメチル-1-p-ヒドロキシフェニルインダン又は6, 6'-ジヒドロキシ-3, 3, 3', 3'-テトラメチル-1, 1'-スピロビインダンであり、これ等の化合物は、三井東圧化学株式会社より入手することが出来る。

## 式(I I I)

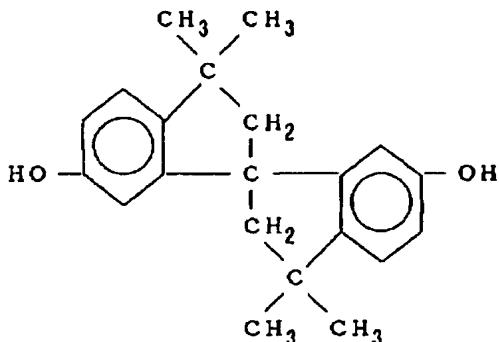
## 【0016】

## 【化7】



## 【0018】

## 【化8】



【0019】本発明の多価フェノール化合物を得るために、これ等インダン骨格含有ビスフェノール類と縮合反応させるアルデヒド類やケトン類としては、例えば、ホ

ルムアルデヒド、パラホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド、ヒドロキシベンズアルデヒド、アセトン、シクロヘキサンなどがあげられる。

【0020】その縮合反応で用いるインダン骨格を有するビスフェノール類に対するアルデヒド類及び/又はケトン類の使用割合が多くなる程製造されるフェノール化合物の分子量が大きくなり耐熱性は向上するが、高粘度となり成形時の取扱い性が悪くなるため、使用目的等に応じて調整する必要があるが、通常は、インダン骨格を有するビスフェノール類1モルに対してアルデヒド類及び/又はケトン類の使用量は0.1~1.0モル、好ましくは0.2~0.8モルである。

【0021】その縮合反応の反応条件としては、一般的ノボランク化反応条件を用いることが出来る。すなわち、酸性触媒の存在下に、20~200℃の温度で1~20時間反応させる。その酸性触媒としては、例えば、塩酸、硫酸等の鉱酸類；シュウ酸、トルエンスルホン酸等の有機酸類；その他酸性を示す有機酸塩類等の通常ノボラック樹脂製造用の酸性触媒が使用出来る。酸性触媒

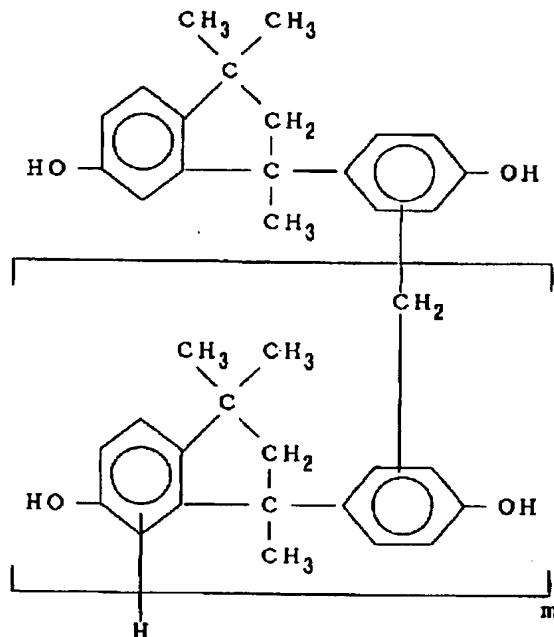
の使用量は、フェノール類100重量部に対して0.1~5重量部である。その縮合反応においては、芳香族炭化水素類、アルコール類、エーテル類等の不活性溶剤さらに触媒などの縮合反応条件を選択することにより、ケトン系溶剤も用いることが出来る。

【0022】以上の様にして製造された多価フェノール化合物は例えばインダン骨格含有ビスフェノール類として6-ヒドロキシ-1,3,3-トリメチル-1-p-ヒドロキシフェニルインダンを用い、アルデヒド類としてホルムアルデヒドを用いた場合は、一般式(V)で表わされる多価フェノール化合物であり、インダン骨格含有ビスフェノール類としては6,6'-ジヒドロキシ-3,3',3'-テトラメチル-1,1'-スピロビインダンを用いアルデヒド類としてホルムアルデヒドを用いた場合には、一般式(VI)で表わされる多価フェノール化合物となる。

一般式(V)

【0023】

【化9】



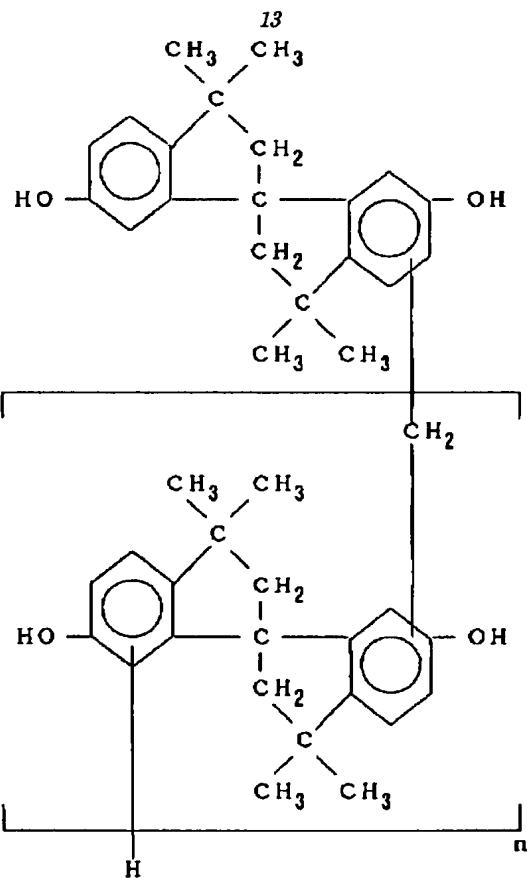
【0024】(mは平均値で0.1~5の数である。)

一般式(VI)

40

【0025】

【化10】



【0026】(nは平均値で0.1~5の数である。)

【0027】次に、本発明のエポキシ樹脂硬化剤は、以上のようにして得られた本発明の多価フェノール化合物を主成分とする硬化剤であり、耐熱性と低吸湿性及び低応力性に優れたエポキシ樹脂硬化物を与えることが出来る。すなわち、本発明のエポキシ樹脂硬化剤は、本発明の多価フェノール化合物を単独で用いた物であってもよいし、これに他のエポキシ樹脂硬化剤を併用した物であってもよい。その併用することの出来る他のエポキシ樹脂硬化剤としては、例えば、ノボラック型フェノール樹脂、ノボラック型クレゾール樹脂等のフェノール樹脂類；テトラヒドロ無水フタル酸、無水ピロメリット酸等の酸無水物類；ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン等のアミン類等があげられる。併用される他の硬化剤の使用量は、全硬化剤量に対して、50重量%以下が好ましい。他の硬化剤の併用量が多くなりすぎると本発明の効果が充分に発揮出来なくなる。

【0028】次に、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂と、前記した本発明のエポキシ樹脂硬化剤とを含有してなる組成物である。そのエポキシ樹脂組成物で用いるエポキシ樹脂には、格別の制限が無く、通常用いられるエポキシ樹脂をはじめとする種々のエポキシ樹脂を用いることが出来る。例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、レゾルシン、ハイドロキ

ン、ビフェノール、テトラメチルビフェノール、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、ビスフェノールAノボラック樹脂、ジシクロペントジエンフェノール樹脂、テルペンフェノール樹脂等の種々のフェノール類やこれらのフェノール類と、ヒドロキシベンズアルデヒド、クルトンアルデヒド、グリオキザールなどの種々のアルデヒド類との縮合反応で得られる多価フェノール樹脂等の各種のフェノール系化合物と、エビハロヒドリンとから製造されるエポキシ樹脂やジアミノジフェニルメタン、アミノフェノール、キシレンジアミンなどの種々のアミン化合物と、エビハロヒドリンとから製造されるエポキシ樹脂などを用いることが出来る。

【0029】本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物には、必要に応じて硬化促進剤、充填材、カップリング剤、難燃剤、可塑剤、溶剤、反応性希釈剤、顔料などを適宜に配合することが出来る。その硬化促進剤としては、例えば、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、などのイミダゾール類；2, 4, 6-トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール、ベンジルジメチルアミンなどのアミン類；トリプチルホスフィン、トリフェニルホスフィンなどの有機リン化合物等があげられる。

【0030】その充填材としては、例えば、溶融シリカ、結晶性シリカ、ガラス粉、アルミナ、ジルコンなどがあげられる。また、その難燃剤としては、例えば、三酸価アンチモン、リン酸などがあげられ、さらに使用するエポキシ樹脂の一部を臭素化エポキシ樹脂として用いることによっても難燃化することが出来る。本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物すなわち本発明の多価フェノール化合物を硬化剤の主成分として用いた硬化性エポキシ樹脂組成物は、従来の他の硬化剤を用いたエポキシ樹脂組成物と較べて、耐熱性が高く、かつ低吸湿性及び低応力性に優れた硬化物を与えるので、封止、積層、塗装などの分野で有利に用いることが出来る。

【0031】

【実施例】以下に、実施例及び比較例をあげてさらに詳述する。なお、実施例1および2は本発明の多価フェノール化合物の例であり、実施例3~6は、実施例1および2の多価フェノール化合物を硬化剤として用いた硬化性エポキシ樹脂組成物の例である。

【0032】実施例1

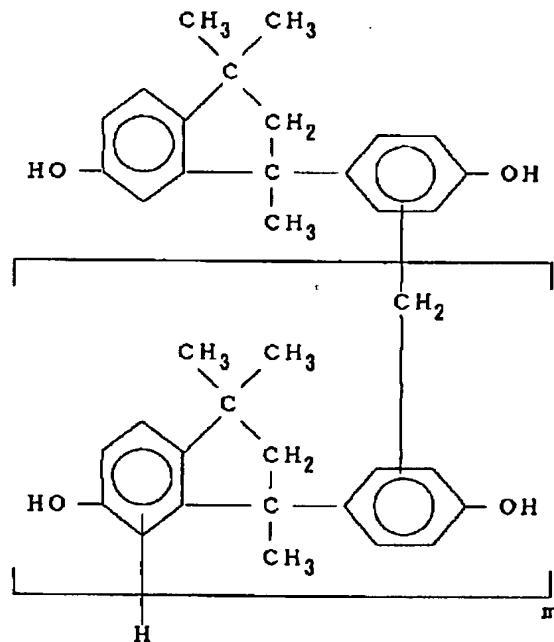
温度計、攪拌装置、冷却管を供えた内容量31の三つ口フラスコに、6-ヒドロシキ-1, 3, 3-トリメチル-1-p-ヒドロキシフェニルインダン1340g、メチルイソブチルケトン1500gおよびシュウ酸10gを仕込み、80℃に昇温して均一に溶解させた。次いで、3.6%ホルムアルデヒド水溶液167gを、前記の溶解液の内温を80℃に保ちながら、1時間かけて滴下した。その後90℃で3時間保って反応させた。続いて、次第に昇温しながら水とメチルイソブチルケトンを

15

留去し、最終的に160℃、5mmHgの減圧下で3時間保って水とメチルイソブチルケトンを完全に除去し、構造式(VII)で示される6-ヒドロシキ-1,3,3-トリメチル-1-p-ヒドロキシフェニルインダン\*を得た。

\* / ホルムアルデヒド縮合化合物を得た。式(VII)  
【0033】  
【化11】

3-トリメチル-1-p-ヒドロキシフェニルインダン\*



【0034】(mは平均値で0.1~5の数である。)この多価フェノール化合物は、フェノール性水酸基当量142g/eq.、軟化点113℃の黄赤色の固体であり、平均分子量は500であった。

【0035】実施例2

実施例1で用いた6-ヒドロシキ-1,3,3-トリメチル-1-p-ヒドロキシフェニルインダン1340gの代りに、6,6'-ジヒドロキシ-3,3,3',3'-テトラメチル-1,1'-スピロビインダン1540gを用い実施例1と同様に縮合反応を行なって、式(VIII)で示される6,6'-ジヒドロキシ-3,3',3'-テトラメチル-1,1'-スピロビインダン/ホルムアルデヒド縮合化合物を得た。式(VI)

I)

【0036】

【化12】

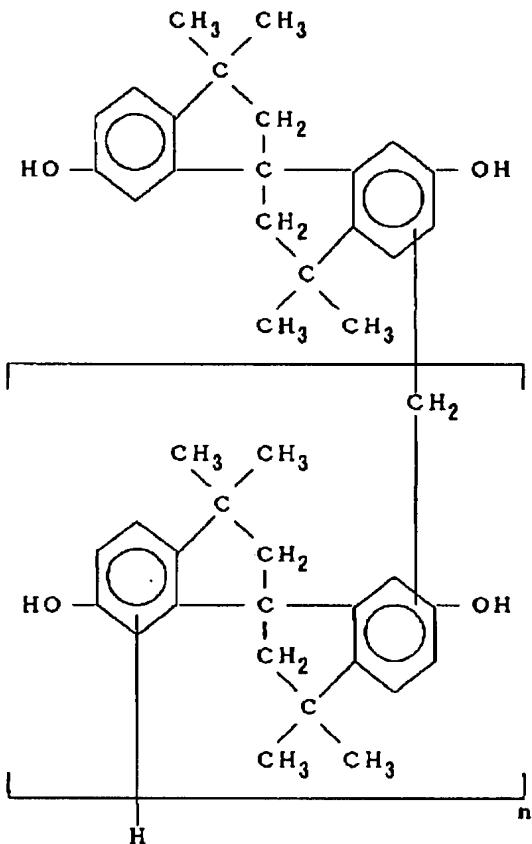
40

50

—691—

16

【0033】  
【化11】



【0037】(nは平均値で0.1~5の数である。)この多価フェノール化合物は、フェノール性水酸基当量161g/eq., 軟化点121℃の黄赤色の固体であり、平均分子量は560であった。組成は表1に示した通りである。

【0038】実施例3~6、比較例1~3

表1に示したように、エポキシ樹脂としてオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、または3,3',5,5'-テトラメチル-4,4'-ビフェノールから誘導されたエポキシ樹脂、硬化剤として実施例1または2で得られた各多価フェノール化合物、フェノールとサリチルアルデヒドとの縮合物またはフェノールノボラック樹脂をそれぞれ用い、難燃剤として臭素化エポキシ樹脂と三酸価アンチモン、硬化促進剤としてトリフェニルホスフィン、充填剤としてシリカ粉末、表面処理剤としてエポキシシラン、さらに離型剤としてカルナバワックスをそれぞれ用いて、各エポキシ樹脂組成物を配合した。次いで、各配合物をミキシングロールを用いて90~110

0℃の温度で5分間溶融混合した。得られた各溶融混合物はシート状に取り出し、粉碎して各成形材料を得た。

【0039】これらの各成形材料を用い低压トランスマーチ成形機で金型温度180℃、成形時間180秒で成形して、ガラス転移温度測定用試験片、吸湿率測定用試験片及び模擬素子を封止した44ピンFPP(フラットプラスチックパッケージ)を得、180℃で8時間ポストキュアさせた。そのポストキュア後のガラス転移温度、吸湿率及びハンド耐熱性を試験した結果は表1に示すとおりであり、実施例3~6の各成形材料は、比較例1~3の成形材料に較べてガラス転移温度が高く、吸湿率が低く、またハンド耐熱性に優れた硬化物を与えた。このハンド耐熱性が優れるのはこれらの成形材料の低吸湿性、低応力性及び高ガラス転移温度によるものであると考えられ、半導体封止用に適するものであった。

【0040】

【表1】

		実験例3	実験例4	実験例5	実験例6	比較例1	比較例2	比較例3
エポキシ樹脂	オルソクリレゾール	オルソクリレゾール	オルソクリレゾール	3,3,5,5'-テトラメチル-4,4'-ビフェノールから誘導 されたエポキシ樹脂 <sup>2</sup>	オルソクリレゾール	3,3,5,5'-テトラメチル-4,4'-ビフェノールから誘導 されたエポキシ樹脂 <sup>2</sup>	3,3,5,5'-テトラメチル-4,4'-ビフェノールから誘導 されたエポキシ樹脂 <sup>2</sup>	3,3,5,5'-テトラメチル-4,4'-ビフェノールから誘導 されたエポキシ樹脂 <sup>2</sup>
エポキシ樹脂 (配合量)	ノボラック型 エポキシ 樹脂 <sup>1</sup> (100)	ノボラック型 エポキシ 樹脂 <sup>1</sup> (100)	ノボラック型 エポキシ 樹脂 <sup>1</sup> (100)	エポキシ 樹脂 <sup>1</sup> (100)	エポキシ 樹脂 <sup>1</sup> (100)	エポキシ 樹脂 <sup>1</sup> (100)	エポキシ 樹脂 <sup>1</sup> (100)	エポキシ 樹脂 <sup>1</sup> (100)
臭素化エポキシ樹脂 <sup>3</sup>	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
配合	実験例1 (74)	実験例2 (84)	実験例2 (41)	実験例2 フェノール ノボラック 樹脂 <sup>4</sup> (27)	実験例2 (87)	フェノール ノボラック 樹脂 <sup>4</sup> (54)	フェノール ノボラック 樹脂 <sup>4</sup> (56)	フェノール ノボラック 樹脂 <sup>4</sup> (53)
量	トリフェニルホスフィン シリカ粉末 <sup>5</sup>	1	1	1	1	1	1	1
量	三酸化アンチモン	429	453	415	460	383	387	380
部	カルナバワックス	10	10	10	10	10	10	10
物	エポキシシラン <sup>6</sup>	1	1	1	1	1	1	1
化	ガラス転移温度 <sup>9</sup> (℃)	174	187	172	163	160	131	152
物	吸湿率 <sup>8</sup> (%)	0.42	0.41	0.46	0.37	0.47	0.41	0.46
物	ハンダ耐熱性 <sup>10</sup>	0/16	0/16	0/16	0/16	13/16	5/16	6/16

【0041】表1の註：

\* 1…油化シエルエポキシ社商品名 エピコート180

H65

エポキシ当量201、軟化点67℃

\* 2…油化シエルエポキシ社商品名 エピコートYX4

000H

エポキシ当量195

\* 3…油化シエルエポキシ社商品名 エピコート505

0

エポキシ当量385、臭素含有量49%

\* 4…群栄化学社製、軟化点85℃

\* 5…油化シエルエポキシ社商品名 エピキュアYL

6065

水酸基当量98、軟化点117℃

\* 6…龍森社商品名 RD-8

\* 7…信越化学工業社商品名 KBM-403

\* 8…TMAを用いて熱膨脹曲線の転移点より求めた。

\* 9…85℃、85%RH 168時間後の吸湿率

\* 10…44ピンFPP 16個を85℃、85%RHに

50 おいて168時間吸湿後、260℃ハンダ浴に10秒間

21

浸漬し、クラックの発生した個数を求めた。

【0042】

【発明の効果】本発明の多価フェノール化合物は、エポキシ樹脂の硬化剤として用いた場合に、耐熱性が高く、

22

吸湿率が低く、かつ応力の低い硬化物を与えることができ、この多価フェノール化合物を用いた本発明のエポキシ樹脂組成物は、封止、積層、成形、接着及び塗装の分野において有利に使用できる。

---

フロントページの続き

(72)発明者 中西 義則

三重県四日市市塩浜町1番地 油化シェル

エポキシ株式会社開発研究所内